

PENGARUH UNSUR Zr TERHADAP PERUBAHAN SIFAT TERMAL BAHAN BAKAR DISPERSI U-7Mo-xZr/Al

Supardjo, Agoeng Kadarjono, Boybul, Aslina Br. Ginting

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang Selatan, 15314

e-mail: suparjo@batan.go.id

(Naskah diterima : 23-12-2015, Naskah direvisi: 11-01-2016, Naskah disetujui: 22-01-2016)

ABSTRAK

PENGARUH UNSUR Zr TERHADAP PERUBAHAN SIFAT TERMAL BAHAN BAKAR DISPERSI U-7Mo-xZr/Al. Data sifat termal bahan bakar nuklir diperlukan sebagai data masukan untuk memprediksi fenomena perubahan sifat material selama proses fabrikasi maupun iradiasi di dalam reaktor nuklir. Penelitian pengaruh unsur Zr di dalam bahan bakar dispersi U-7Mo-xZr/Al ($x = 1\%$, 2% dan 3%) terhadap perubahan sifat termal pada berbagai temperatur telah dilakukan. Tujuan penambahan unsur Zr pada penelitian adalah untuk meningkatkan stabilitas panas bahan bakar U-Mo. Analisis termal meliputi penentuan temperatur lebur, entalpi dan perubahan fasa dilakukan menggunakan *Differential Thermal Analysis (DTA)* pada rentang temperatur antara $30\text{ }^{\circ}\text{C}$ hingga $1400\text{ }^{\circ}\text{C}$, sedangkan kapasitas panas paduan U-7Mo-xZr dan bahan bakar dispersi U-7Mo-xZr/Al menggunakan *Differential Scanning Calorimeter (DSC)* pada temperatur ruangan hingga $450\text{ }^{\circ}\text{C}$. Data analisis termal dengan DTA diketahui bahwa ketiga komposisi kadar Zr menunjukkan fenomena yang mendekati sama. Pada temperatur antara $565,60\text{ }^{\circ}\text{C}$ - $584,98\text{ }^{\circ}\text{C}$ terjadi perubahan fasa $\alpha + \delta$ menjadi $\alpha + \gamma$, dan pada $649,22\text{ }^{\circ}\text{C}$ - $650,13\text{ }^{\circ}\text{C}$ terjadi peleburan matriks Al yang diikuti oleh reaksi antara matriks Al dengan U-7Mo-xZr pada temperatur $670,38\text{ }^{\circ}\text{C}$ - $673,38\text{ }^{\circ}\text{C}$ membentuk $\text{U}(\text{Al},\text{Mo})_x\text{Zr}$. Sementara itu, perubahan fasa $\alpha + \beta$ menjadi $\beta + \gamma$ terjadi pada temperatur $762,08\text{ }^{\circ}\text{C}$ - $776,33\text{ }^{\circ}\text{C}$ dan difusi antara matriks Al dengan U-7Mo-xZr terjadi pada $853,55\text{ }^{\circ}\text{C}$ - $875,20\text{ }^{\circ}\text{C}$. Setiap fenomena yang terjadi, entalpi yang ditimbulkan relatif stabil. Peleburan uranium terjadi pada $1052,42\text{ }^{\circ}\text{C}$ - $1104,99\text{ }^{\circ}\text{C}$ dan reaksi dekomposisi $\text{U}(\text{Al},\text{Mo})_x$ dan $\text{U}(\text{Al},\text{Zr})_x$ menjadi $(\text{UAl}_4, \text{UAl}_3, \text{UAl}_2)$, U-Mo, dan UZr pada $1328,34\text{ }^{\circ}\text{C}$ - $1332,06\text{ }^{\circ}\text{C}$. Keberadaan logam Zr di dalam paduan U-Mo meningkatkan kapasitas panas bahan bakar paduan U-7Mo-xZr/Al, semakin tinggi kadar Zr kapasitas panas meningkat yang disebabkan oleh interaksi antara atom Zr dengan matriks Al sehingga panas yang diserap oleh bahan bakar menjadi meningkat

Kata kunci: bahan bakar dispersi U-7Mo-xZr/Al, transformasi fasa, entalpi, kapasitas panas.

ABSTRACT

EFFECT OF THE Zr ELEMENTS WITH THERMAL PROPERTIES CHANGES OF U-7Mo-xZr/Al DISPERSION FUEL. Thermal properties data of nuclear fuel is required as input data to predict material properties change phenomenon during the fabrication process and irradiated in a nuclear reactor. Study the influence of Zr element in the U-7Mo-xZr/Al ($x = 1\%$, 2% and 3%) fuel dispersion to changes in the thermal properties at various temperatures have been stiffened. Thermal analysis includes determining the melting temperature, enthalpy, and phase changes made using Differential Thermal Analysis (DTA) in the temperature range between $30\text{ }^{\circ}\text{C}$ up to $1400\text{ }^{\circ}\text{C}$, while the heat capacity of U-7Mo-xZr alloy and U-7Mo-xZr/Al dispersion fuel using Differential Scanning Calorimeter (DSC) at room temperature up to $450\text{ }^{\circ}\text{C}$. Thermal analyst data DTA shows that Zr levels of all three compositions showed a similar phenomenon. At temperatures between $565.60\text{ }^{\circ}\text{C} - 584.98\text{ }^{\circ}\text{C}$ change becomes $\alpha + \delta$ to $\alpha + \gamma$ phase and at $649.22\text{ }^{\circ}\text{C} - 650.13\text{ }^{\circ}\text{C}$ happen smelting Al matrix Occur followed by a reaction between Al matrix with U-7Mo-xZr on $670.38\text{ }^{\circ}\text{C} - 673.38\text{ }^{\circ}\text{C}$ form $\text{U}(\text{Al}, \text{Mo})_x\text{Zr}$. Furthermore a phase change $\alpha + \beta$ becomes $\beta + \gamma$ Occurs at temperatures $762.08\text{ }^{\circ}\text{C} - 776.33\text{ }^{\circ}\text{C}$ and diffusion between the matrix by U-7Mo-xZr/Al on $853.55\text{ }^{\circ}\text{C} - 875.20\text{ }^{\circ}\text{C}$. Every phenomenon that Occurs, enthalpy posed a relative stable. Consolidation of uranium Occur in $1052.42\text{ }^{\circ}\text{C} - 1104.99\text{ }^{\circ}\text{C}$ and decomposition reaction of $\text{U}(\text{Al}, \text{Mo})_x$ and $\text{U}(\text{Al}, \text{Zr})_x$ becomes $(\text{UAl}_4, \text{UAl}_3, \text{UAl}_2)$, U-Mo, and UZr on $1328,34\text{ }^{\circ}\text{C} - 1332,06\text{ }^{\circ}\text{C}$, The existence of Zr in U-Mo alloy increases the heat capacity of the U-7Mo-xZr/Al, dispersion fuel and the higher heat capacity of Zr levels increased due to interactions between the atoms of Zr with Al matrix so that the heat absorbed by the fuel increase.

Keywords: U-7Mo-xZr/Al dispersion fuel, phase transformation, enthalpy, heat capacity.

PENDAHULUAN

Bahan bakar nuklir merupakan salah satu komponen utama beroperasinya reaktor nuklir. Secara umum reaktor nuklir terdiri dari dua jenis yaitu reaktor daya untuk menghasilkan energi listrik dan reaktor riset yang dimanfaatkan untuk penelitian dan produksi radioisotop. Reaktor riset semula di desain menggunakan bahan bakar dengan uranium pengayaan tinggi ($>93\%$ ^{235}U) dalam bentuk UAl_x, tetapi uranium dengan pengayaan tinggi sangat mudah disalahgunakan oleh orang-orang yang tidak bertanggung jawab untuk persenjataan yang berpotensi dapat mengganggu stabilitas dunia. Berdasarkan alasan tersebut maka untuk menghindari perihail yang tidak diinginkan, semua reaktor riset di dunia yang masih beroperasi dihimbau agar mengganti bahan bakar dengan uranium pengayaan rendah ($<20\%$ ^{235}U)^[1]. Reaktor yang akan dibangun didesain dengan bahan bakar menggunakan uranium pengayaan rendah, maka sebagai konsekuensinya diperlukan material paduan uranium yang berdensitas tinggi dan memiliki spesifikasi sesuai yang dipersyaratkan sebagai bahan bakar nuklir. Dengan menggunakan paduan uranium, densitas uranium di dalam bahan bakar dapat ditingkatkan minimal sama dengan bahan bakar pengayaan tinggi pada desain dimensi yang tetap.

Logam uranium murni pada prinsipnya dapat digunakan sebagai bahan bakar nuklir dengan densitas tinggi, tetapi pada temperatur tinggi maupun selama di iradiasi di dalam reaktor hanya fasa γ -U yang stabil, sedangkan logam uranium pada temperatur ruangan didominasi fasa α -U yang mudah *sweelling*^[2]. Dengan alasan tersebut maka dalam pemakaiannya sebagai bahan bakar perlu dibuat paduan uranium yang memiliki daerah fasa γ -U yang cukup luas pada temperatur tinggi dengan cara menambahkan unsur logam Mo sebagai pepadu.

Paduan uranium-molybdenum atau U-Mo adalah material yang dipandang penting dan menarik oleh masyarakat yang berkecimpung di dalam teknik nuklir berkaitan dengan pengembangan bahan bakar reaktor nuklir menggunakan uranium pengayaan rendah ($<20\%$ ^{235}U). Unsur logam Mo sebagai pepadu uranium dimaksudkan untuk meningkatkan stabilitas fasa gamma uranium dan juga untuk meningkatkan titik leleh bahan bakar^[3].

Pengembangan bahan bakar reaktor riset berbasis U-Mo merupakan program internasional yang diharapkan menjadi solusi untuk mengkonversi pengoperasian reaktor riset yang berbahan bakar uranium dengan pengayaan tinggi menjadi pengayaan rendah^[4]. Pengembangan bahan bakar dispersi jenis U-Mo/Al bertujuan untuk mendapatkan bahan bakar baru yang memiliki densitas uranium tinggi dengan unjuk kerja yang baik selama digunakan sebagai bahan bakar di dalam reaktor^[5].

Ketertarikan penggunaan bahan bakar paduan U-Mo diantaranya adalah paduan U-Mo mempunyai struktur kristal bcc (*body cubic center*) di fasa γ , tampang lintang serapan neutron Mo rendah, tahan terhadap korosi, densitas $16,4\text{ g/cm}^3$ (nilai densitas tergantung $\%\text{Mo}$)^[6] dan proses olah ulang sangat mudah dilakukan. Dengan menggunakan paduan U-Mo sebagai bahan bakar dispersi densitas uranium di dalam inti elemen bakar (IEB) dapat ditingkatkan menjadi $> 8\text{ gU/cm}^3$. Densitas uranium tersebut lebih tinggi dibandingkan dengan bahan bakar dispersi $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$ yang hanya $4,8\text{ gU/cm}^3$ dan telah dipakai sebagai bahan bakar reaktor riset di dunia hingga saat ini, sehingga dengan menggunakan bahan bakar paduan U-Mo menyebabkan waktu tinggal di dalam reaktor dapat lebih lama dan ekonomis^[4,7,8].

Keunggulan lain yang dimiliki paduan U-Mo adalah mempunyai daerah fasa gamma (γ) yang relatif besar dan mempunyai kompatibilitas serta stabilitas panas dengan matriks Al relatif baik. Karena keunggulan

yang dimiliki oleh paduan U-Mo tersebut maka paduan U-Mo merupakan salah satu kandidat bahan bakar reaktor riset yang sedang banyak dipelajari di dunia untuk dilakukan penelitian dan pengembangan teknologi fabrikasi maupun penggunaan di dalam reaktor.

Komposisi paduan U-Mo dengan kadar Mo antara 7 ~ 12% berat memiliki prospek yang sangat baik digunakan sebagai bahan bakar nuklir untuk reaktor riset, tetapi penelitian untuk mendapatkan bahan bakar yang terbaik terus dilakukan dengan cara mengubah beberapa parameter^[9]. Data penelitian yang telah dilakukan oleh para peneliti bahan bakar reaktor riset tipe dispersi U-Mo/Al menunjukkan bahwa pengaruh panas dan atau iradiasi terjadi interdifusi atau reaksi kimia antara partikel U-Mo dan Al membentuk lapisan senyawa intermetalik UAl_x ^[10]. Senyawa UAl_x memiliki densitas lebih rendah dibandingkan dengan kombinasi densitas reaktan (U-Mo dan matriks Al) sehingga konduktivitas panas menurun dan berdampak pada kenaikan temperatur yang menyebabkan terjadinya pori dan *sweeling* pada bahan bakar. Untuk mengurangi pembentukan *layer* dan pori, maka perlu dilakukan modifikasi bahan bakar U-Mo/Al dengan menambahkan elemen logam transisi ke dalam paduan U-Mo sehingga mampu menstabilkan lapisan hasil interaksi dan mereduksi *sweeling*^[11].

Secara teoritis terdapat beberapa cara yang dapat dilakukan untuk meningkatkan stabilitas bahan bakar dispersi U-Mo/Al diantaranya adalah dengan menambahkan unsur logam ketiga seperti unsur Zr, Ti, Si, Sn, dan Mg dalam jumlah sedikit baik dalam paduan U-Mo maupun serbuk matriks atau keduanya^[12]. Pada penelitian ini peningkatan stabilitas bahan bakar dilakukan dengan cara menambahkan unsur Zr ke dalam paduan U-Mo sehingga menjadi U-Mo-Zr.

Dalam penggunaannya sebagai bahan bakar dispersi, sifat termal bahan

bakar U-Mo-Zr/Al perlu diteliti untuk mengetahui perubahan fasa, entalpi dan kapasitas panas yang disebabkan oleh perubahan temperatur. Prediksi perubahan fasa akibat perubahan temperatur selama digunakan sebagai bahan bakar di dalam reaktor sangat diperlukan karena akan berpengaruh terhadap karakteristik dan unjuk kerjanya. Sifat termal merupakan kunci utama untuk mendesain dan mengoptimalkan temperatur di dalam teras reaktor^[13]. Kapasitas panas menggambarkan sejumlah panas yang diperlukan untuk mengubah temperatur bahan bakar. Dengan mengetahui kapasitas panas bahan bakar sebagai fungsi temperatur dan apabila nilai kapasitas panasnya tinggi dapat membantu stabilitas bahan bakar karena panas tidak terakumulasi di dalam bahan bakar sehingga dapat memperkecil kemungkinan kerusakan bahan bakar^[14].

Data yang diperoleh pada penelitian ini diharapkan dapat menjadi data masukan sebagai data karakterisasi untuk diterapkan pada proses pabrikan maupun saat penggunaan bahan bakar dispersi U-MoZr/Al di dalam reaktor.

METODOLOGI

Paduan U-7Mo-xZr dengan kadar Zr ($x = 1\%$, 2% dan 3% berat) dibuat dengan teknik peleburan menggunakan tungku busur listrik dalam media gas argon. Komposisi penimbangan logam U, Mo dan Zr untuk pembuatan paduan U-7Mo-xZr ditunjukkan pada Tabel 1^[6].

Tabel 1. Komposisi logam U, Mo dan Zr pada pembuatan paduan U-7Mo-xZr

Paduan	Berat logam, g		
	U	Mo	Zr
U-7Mo-1Zr	15,1163	1,1371	0,1643
U-7Mo-2Zr	14,9937	1,1282	0,3299
U-7Mo-3Zr	14,9653	1,1241	0,4987

Ingot hasil peleburan diubah menjadi serbuk dengan teknik *hydride-*

dehydride-grinding milling. Serbuk U-7Mo-Zr dicampur dengan serbuk matriks Al dengan densitas uranium 6 gU/cm^3 dengan perbandingan berat serbuk U-7Mo-xZr dan matriks Al seperti ditunjukkan pada Tabel 2 dan masing-masing campuran dilakukan pengujian termal.

Tabel 2. Komposisi berat serbuk U-7Mo-xZr dan matriks Al pada pembuatan bahan bakar U-7Mo-xZr densitas uranium 6 gU/cm^3

Bahan bakar	Berat serbuk, g	
	U-7Mo-xZr	Al
U-7Mo-1Zr/Al	5,6622	1,2801
U-7Mo-2Zr/Al	6,2246	1,3608
U-7Mo-3Zr/Al	6,1132	1,4742

Analisis sifat termal dilakukan meliputi penentuan temperatur lebur, entalpi dan perubahan fasa dari bahan bakar paduan U-7Mo-xZr/Al dengan variasi kadar Zr 1%, 2% dan 3% menggunakan *Differential Thermal Analysis (DTA)*. Sampel U-7Mo-1Zr/Al ditimbang dengan berat 150 mg, kemudian dimasukkan ke dalam krusibel alumina. Krusibel tersebut diletakkan di dalam *chamber DTA rod* untuk divakumkan hingga tekanan 10^{-1} bar. Setelah tercapai kondisi vakum, selanjutnya *chamber DTA rod* dialiri gas argon dengan tekanan 2,5 bar. Analisis sifat termal bahan bakar U-7Mo-1Zr/Al dilakukan pada temperatur 30°C hingga 1400°C dengan kecepatan pemanasan $10^\circ\text{C/menit}^{[15]}$. Hasil analisis lebur, entalpi dan perubahan fasa bahan bakar U-7Mo-xZr/Al dengan DTA diperoleh termogram berupa puncak endotermik atau eksotermik yang menunjukkan terjadinya reaksi peleburan. Temperatur mulai terbentuknya puncak disebut *onset temperature* dan titik akhir terbentuknya puncak disebut *top temperature* yang menunjukkan terjadinya proses peleburan atau perubahan fasa, sedangkan luas puncak yang terbentuk menunjukkan besar entalpi yang dibutuhkan atau dilepaskan^[15]. Langkah pengukuran berikutnya dilakukan juga terhadap bahan

bakar U-7Mo-xZr/Al dengan variasi kadar Zr 1%, 2%, dan 3% serta paduan U-7Mo.

Penentuan kapasitas panas paduan U-7Mo-xZr variasi kadar Zr 1%, 2% dan 3% dilakukan dengan *Differential Scanning Calorimeter (DSC)*. Paduan U-7Mo-1Zr ditimbang dengan berat 100 mg, kemudian dimasukkan ke dalam krusibel aluminium. Krusibel aluminium yang telah berisi sampel U-7Mo-1Zr diletakkan di dalam *chamber DSC* untuk divakumkan hingga tekanan mencapai 10^{-1} bar. Setelah kondisi vakum tercapai, selanjutnya *chamber DSC* dialiri gas argon dengan tekanan 2,5 bar. Analisis kapasitas panas paduan U-7Mo-1Zr dilakukan pada temperatur ruangan hingga 450°C dengan kecepatan pemanasan $5^\circ\text{C/menit}^{[16]}$. Pengukuran kapasitas panas berikutnya dilakukan juga terhadap paduan U-7Mo-xZr/Al variasi unsur Zr 2% dan 3% dan dibandingkan dengan kapasitas panas paduan U-7Mo.

HASIL DAN PEMBAHASAN

a. Analisis temperatur lebur, entalpi dan perubahan fasa

Telah dilakukan karakterisasi sifat termal bahan bakar dispersi U-7Mo-xZr/Al variasi kadar Zr. Karakterisasi sifat termal yang dianalisis meliputi temperatur lebur, entalpi, perubahan fasa dan kapasitas panas. Hasil analisis temperatur lebur dan entalpi U-7Mo-1Zr/Al diperoleh dalam bentuk termogram seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Termogram DTA paduan U-7Mo-1Zr/Al

Gambar 1 menunjukkan bahwa bahan bakar U-7Mo-1Zr/Al mengalami perubahan fasa dari fasa $\alpha + \delta$ menjadi fasa $\alpha + \gamma$ ^[15] pada temperatur 565,60 °C hingga 596,11 °C. Fenomena ini ditunjukkan dengan adanya perubahan *base line* aliran panas pengukuran yang mulai terjadi pada temperatur 565,60 °C seperti yang terlihat pada Gambar 1, puncak-1. Reaksi perubahan fasa $\alpha + \delta$ menjadi fasa $\alpha + \gamma$ membutuhkan sejumlah panas $\Delta H = 0,79$ cal/g. Pada temperatur 649,22 °C hingga 659,68 °C bahan bakar U-7Mo-1Zr/Al dengan kadar Zr 1% mengalami reaksi peleburan matriks Al dengan membutuhkan sejumlah panas sebesar $\Delta H = 18,31$ cal/g. Reaksi peleburan matriks Al ini diindikasikan dengan terjadinya reaksi endotermik pada *onset temperature* 649,22 °C dan berakhir pada *top temperature* 659,68 °C seperti yang ditunjukkan pada Gambar-1 puncak-2. Hal diatas menunjukkan bahwa matriks Al di dalam paduan U-7Mo-1Zr mulai melebur pada temperatur 649,22 °C dan peleburan berakhir pada temperatur 659,68 °C dengan membutuhkan entalpi sebesar $\Delta H = 18,31$ cal/g.

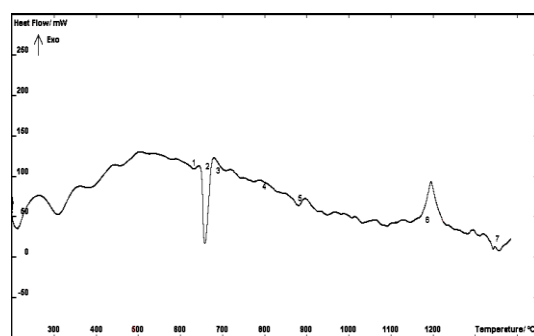
Pemanasan lebih lanjut terhadap bahan bakar U-7Mo-1Zr/Al pada temperatur 673,38 °C hingga 693,69 °C seperti yang ditunjukkan pada Gambar-1 puncak-3, terlihat bahwa hasil leburan matriks Al secara langsung bereaksi dengan bahan bakar U-Mo membentuk senyawa $U(Al,Mo)_x$ ^[15]. Reaksi pembentukan senyawa $U(Al,Mo)_x$ ditunjukkan dengan terjadinya reaksi eksotermik secara cepat setelah terjadi reaksi peleburan dari matriks Al. Pembentukan senyawa $U(Al,Mo)_x$ -Zr mulai terjadi pada *onset temperature* 673,38 °C dan berakhir pada *top temperature* 693,69 °C dengan mengeluarkan sejumlah panas sebesar $\Delta H = -29,71$ cal/g seperti yang ditunjukkan pada puncak 3 Gambar-1. Reaksi termik eksotermik pada puncak-3 terjadi sangat berdekatan dengan puncak endotermik reaksi peleburan matriks Al yang terjadi pada puncak-2. Hal ini disebabkan

karena adanya pengikatan atau difusi lelehan matriks Al ke dalam senyawa U-Mo secara cepat, yang disebabkan karena lelehan matriks Al mempunyai kontak antar muka dengan gaya gerak yang lebih besar sehingga ikatan intermetalik lelehan matriks Al dengan U-Mo terjadi secara simultan^[15]. Reaksi eksotermik untuk pembentukan senyawa $U(Al,Mo)_x$ -Zr berlangsung hingga temperatur pemanasan 762,08 °C. Pada temperatur 762,08 °C hingga 783,19 °C terjadi reaksi eksotermik yang menunjukkan terbentuk dua senyawa UAl_x dan U-Mo dalam kondisi metastabil dengan mengeluarkan panas $\Delta H = -1,97$ cal/g seperti yang ditunjukkan pada puncak-4 Gambar 1^[16]. Selain pembentukan senyawa UAl_x dan U-Mo dalam kondisi metastabil, pada temperatur pemanasan ini terjadi perubahan fasa bahan bakar U-7Mo-Zr/Al. Gambar 1, puncak 4 menunjukkan bahwa logam uranium mengalami perubahan fasa dari $\alpha + \beta$, menjadi fasa $\beta + \gamma$, molybdenum mengalami perubahan fasa dari fasa $\alpha + \beta$ menjadi $\beta + \gamma$, sedangkan logam zirkonium mengalami perubahan fasa dari β menjadi γ ^[16]. Paduan U-7Mo-Zr yang telah mengalami perubahan fasa tersebut berinteraksi dan berdifusi dengan lelehan matriks Al membentuk senyawa $U(Al,Mo)_x$ dan $U(Al,Zr)_x$ yang ditunjukkan oleh reaksi eksotermik pada Gambar 1, puncak 5. Proses interaksi yang terjadi antara paduan U-7Mo-Zr dengan lelehan matriks Al membentuk senyawa metastabil $U(Al,Mo)_x$ dan $U(Al,Zr)_x$ yang terjadi pada temperatur 853,55 °C hingga 869,15 °C dengan entalpi yang dibutuhkan sebesar $\Delta H = 6,10$ cal/g.

Gambar 1, puncak 6 menunjukkan bahwa pada temperatur 1100,09 °C hingga 1109,04 °C terlihat adanya reaksi endotermik yang menunjukkan terjadinya proses peleburan logam uranium. Proses reaksi peleburan uranium tersebut membutuhkan panas sebesar $\Delta H = 5,08$ cal/g. Senyawa metastabil $U(Al,Mo)_x$ dan $U(Al,Zr)_x$ yang terbentuk sebelumnya pada puncak 5 secara langsung bereaksi

dengan leburan uranium membentuk senyawa $U(Al,Mo)_x$ dan $U(Al,Zr)_x$ yang stabil. Pemanasan lebih lanjut pada temperatur 1328,34 °C sampai dengan 1365,17 °C terjadi reaksi endotermik yang menunjukkan terjadinya reaksi peruraian atau reaksi dekomposisi $U(Al,Mo)_x$ dan $U(Al,Zr)_x$ menjadi senyawa UAl_x (UAl_4 , UAl_3 dan UAl_2), senyawa U-Mo dan U-Zr seperti yang terlihat pada puncak 7 Gambar-1. Pembentukan senyawa UAl_x (UAl_4 , UAl_3 dan UAl_2) terjadi disebabkan oleh pengikatan logam uranium dengan lelehan matriks Al^[9], sedangkan pembentukan senyawa U-Mo, dan U-Zr disebabkan oleh pengikatan logam uranium dengan Mo dan Zr^[15,16] dengan jumlah panas yang dibutuhkan sebesar $\Delta H = 5,33$ cal/g. Besarnya pembentukan senyawa tersebut harus diidentifikasi lebih lanjut dengan menggunakan X-Ray Difraktometer (XRD).

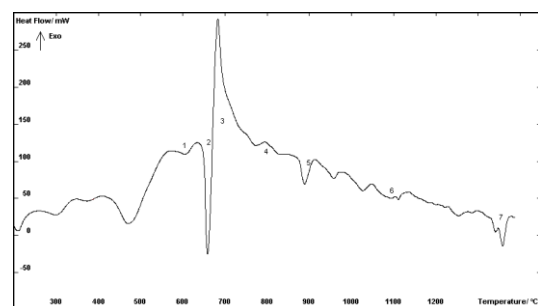
Hasil analisis temperatur lebur, entalpi dan perubahan fasa paduan U-7Mo-2Zr/Al dan U-7Mo-3Zr/Al ditunjukkan oleh termogram DTA pada Gambar 2 dan 3.



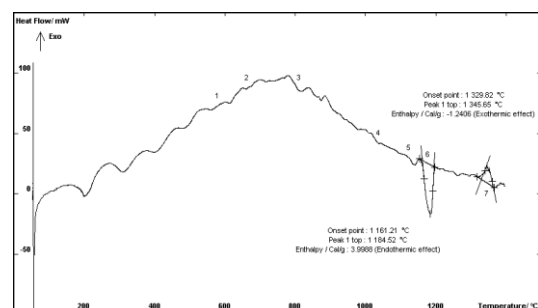
Gambar 2. Termogram DTA paduan U-7Mo-2Zr/Al

Gambar 2 dan 3 menunjukkan bahwa perubahan temperatur lebur dan perubahan fasa bahan bakar U-7Mo-2Zr/Al dan U-7Mo-3Zr/Al hampir sama dengan besar temperatur lebur dan perubahan fasa bahan U-7Mo-1Zr/Al pada Gambar 1. Hal ini menunjukkan bahwa penambahan unsur Zr variasi 1%; 2% dan 3% tidak memberikan perubahan temperatur lebur dan perubahan fasa bahan bakar U-7Mo-xZr/Al, tetapi terjadi sedikit perubahan besaran entalpi, baik entalpi peleburan matriks Al maupun

entalpi peleburan uranium. Perubahan besaran entalpi ini sesuai dengan kadar matriks Al maupun logam uranium di dalam bahan bakar tersebut. Perbedaan ini tidak mempengaruhi karakter termal bahan bakar U-7Mo-xZr/Al secara signifikan. Hal ini juga dibandingkan dengan termogram DTA paduan U-7Mo/Al seperti yang terlihat pada Gambar 4^[15]. Pembandingan bertujuan untuk mengetahui pengaruh penambahan unsur Zr 1%; 2% dan 3% terhadap perubahan karakter termal bahan bakar tersebut.



Gambar 3. Termogram DTA bahan bakar U-7Mo-3Zr/Al



Gambar 4. Termogram DTA paduan U-7Mo

Hasil analisis menunjukkan bahwa paduan U-7Mo/Al mempunyai karakter termal yang hampir sama dengan fenomena reaksi perubahan fasa bahan bakar U-7Mo-xZr/Al. Paduan U-7Mo mengalami perubahan fasa pada temperatur 578,63 °C terjadi perubahan fasa dari $\alpha + \delta$ menjadi fasa $\alpha + \beta$ seperti ditunjukkan pada Gambar 4. Terjadinya perubahan fasa ditunjukkan dengan adanya perubahan *base line* aliran panas termogram DTA pada temperatur 578,63 °C seperti yang terlihat pada Gambar 4, puncak 1. Pada temperatur 606,50 °C hingga 627,58 °C terjadi perubahan fasa $\alpha + \beta$ menjadi fasa $\alpha + \gamma$

seperti yang terlihat pada Gambar 4, puncak 2. Pemanasan pada temperatur 700,76 °C hingga 885,81 °C terjadi perubahan fasa dari $\alpha + \beta$ menjadi $\beta + \gamma$ seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4 puncak 3, sedangkan pada puncak 4 dan 5 terjadi perubahan aliran panas (*heat flow*) pada temperatur 1075,45 °C hingga 1160,51 °C yang menunjukkan terjadinya perubahan fasa dari $\beta + \gamma$ menjadi fasa γ . Pada temperatur 1161,21 °C hingga 1184,52 °C terjadi perubahan fasa dari γ membentuk fasa liquid L + γ , selain terjadi perubahan fasa, pada temperatur tersebut juga terjadi peleburan logam uranium.

Reaksi peleburan uranium dan perubahan fasa ditunjukkan oleh reaksi

endotermik pada Gambar 4, puncak 6 dengan membutuhkan panas reaksi (entalpi) sebesar $\Delta H = 3,99$ cal/g. Fenomena reaksi peleburan ini berlangsung hingga terjadi interaksi antara uranium dengan molybdenum mengikuti reaksi peritektik membentuk fasa γ - larutan padat (*solid solution*) uranium dan molybdenum. Reaksi peritektik ini terjadi pada temperatur 1329,95 °C hingga 1345,65 °C yang ditunjukkan oleh reaksi eksotermik pada Gambar 4, puncak 7 dengan mengeluarkan panas sebesar $\Delta H = -1,24$ cal/g.

Karakter termal yang meliputi temperatur lebur, entalpi dan perubahan fasa bahan bakar U-7Mo-xZr/Al secara menyeluruh ditunjukkan pada Tabel 3.

Tabel 3. Data karakter termal bahan bakar U-7Mo-xZr/Al variasi Zr

Fenomena reaksi termokimia	Puncak	U-7Mo-1Zr/Al	U-7Mo-2Zr/Al	U-7Mo-3Zr/Al
Perubaan fasa $\alpha + \delta$ menjadi $\alpha + \gamma$	1	T = 565,60 °C $\Delta H = 2,34$ cal/g	T = 575,21 °C $\Delta H = 1,88$ cal/g	T = 584,98 °C $\Delta H = 0,79$ cal/g
Peleburan matriks Al	2	T = 649,22 °C $\Delta H = 14,08$ cal/g	T = 650,13 °C $\Delta H = 15,37$ cal/g	T = 650,03 °C $\Delta H = 18,31$ cal/g
Reaksi matriks Al dengan U-7Mo-xZr	3	T = 673,38 °C $\Delta H = 14,71$ cal/g	T = 671,48 °C $\Delta H = 14,42$ cal/g	T = 670,38 °C $\Delta H = 14,87$ cal/g
Perubahan fasa $\alpha + \beta$ menjadi $\beta + \gamma$	4	T = 762,08 °C $\Delta H = 1,97$ cal/g	T = 776,01 °C $\Delta H = 2,33$ cal/g	T = 776,33 °C $\Delta H = 4,23$ cal/g
Difusi matriks Al dengan U-7Mo-xZr	5	T = 853,55 °C $\Delta H = 6,10$ cal/g	T = 860,98 °C $\Delta H = 3,05$ cal/g	T = 875,20 °C $\Delta H = 3,85$ cal/g
Peleburan logam uranium	6	T = 1100,09 °C $\Delta H = 1,58$ cal/g	T = 1104,99 °C $\Delta H = 1,61$ cal/g	T = 1052,42 °C $\Delta H = 1,54$ cal/g
Reaksi dekomposisi $U(Al,Mo)_x$ dan $U(Al,Zr)_x$ menjadi (UAl_4, UAl_3, UAl_2) U-Mo dan UZr	7	T = 1328,34 °C $\Delta H = 3,90$ cal/g	T = 1331,51 °C $\Delta H = 5,33$ cal/g	T = 1332,06 °C $\Delta H = 6,45$ cal/g

Dari Tabel 3 dapat diketahui bahwa variasi kadar Zr 1%, 2% dan 3% pada bahan bakar U-7Mo-xZr/Al tidak memberikan perubahan temperatur peleburan maupun perubahan fasa bahan bakar tersebut, tetapi terjadi perubahan entalpi pada fenomena perubahan fasa maupun proses peleburan. Perubahan fasa dari $\alpha + \delta$ menjadi $\alpha + \gamma$ (puncak 1) mengalami perubahan entalpi dari $\Delta H = 0,79$ cal/g untuk U-7Mo-1Zr/Al menjadi $\Delta H = 1,88$ cal/g untuk U-7Mo-2Zr/Al dan $\Delta H = 3,34$ cal/g untuk bahan bakar paduan U-7Mo-3Zr/Al. Perubahan fasa ini

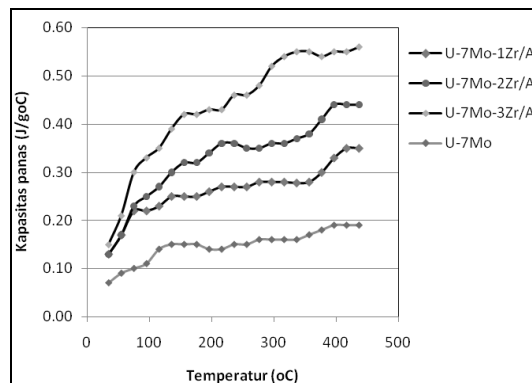
dominan dipengaruhi oleh matriks Al, karena pada temperatur 565,60 °C hingga 584,98 °C merupakan titik eutektik logam Al. Semakin besar kadar Zr dalam bahan bakar paduan U-7Mo-xZr/Al maka semakin kecil kadar matriks Al, sehingga entalpi perubahan fasa juga semakin kecil. Demikian halnya dengan entalpi peleburan matriks Al (puncak 2), jelas terlihat bahwa entalpi peleburan semakin kecil dengan meningkatnya kadar logam Zr, sehingga menyebabkan entalpi peleburan matriks Al juga semakin kecil.

Reaksi matriks Al dengan bahan bakar paduan U-7Mo-xZr (puncak 3) tidak memberikan perubahan entalpi yang signifikan. Hal ini disebabkan karena waktu kontak lelehan matriks Al dengan bahan bakar paduan U-7Mo-xZr sangat cepat seperti yang terlihat pada Gambar 1, 2, dan 3, puncak 3, sehingga lelehan matriks Al belum sampai berdifusi ke dalam bahan bakar paduan U-7Mo-xZr. Perubahan fasa $\alpha + \beta$ menjadi $\beta + \gamma$ pada paduan U-7Mo-xZr (puncak 4) mempunyai entalpi bertambah besar dengan kenaikan kadar Zr yaitu sebesar $\Delta H = 1,97$ cal/g untuk paduan bahan bakar U-7Mo-1Zr, $\Delta H = 2,33$ cal/g untuk paduan U-7Mo-2Zr dan $\Delta H = 3,85$ cal/g untuk paduan U-7Mo-3Zr.

Proses difusi lelehan matriks Al dengan U-7Mo-xZr terjadi pada temperatur 860 °C dengan besar entalpi rerata sebesar $\Delta H = 3,05$ cal/g (puncak 5), sedangkan entalpi proses peleburan uranium untuk ketiga paduan diperoleh hampir sama sebesar $\Delta H = 1,58$ cal/g untuk U-7Mo-1Zr, $\Delta H = 1,61$ cal/g untuk U-7Mo-2Zr dan sebesar $\Delta H = 1,54$ cal/g untuk bahan bakar paduan U-7Mo-3Zr (puncak 6). Entalpi peleburan paduan U-7Mo-2Zr tidak mempunyai perbedaan yang signifikan dengan paduan U-7Mo-1Zr dan U-7Mo-3Zr, perbedaan entalpi $\Delta H = 1,58$ cal/g dengan $\Delta H = 1,61$ cal/g disebabkan faktor kesalahan pada saat membaca *base line heat flow* termogram DTA. Pada puncak 7, terlihat jelas bahwa entalpi yang dibutuhkan untuk proses reaksi dekomposisi senyawa $U(Al,Mo)_x$ dan $U(Al,Zr)_x$ menjadi UAl_4 , UAl_3 , UAl_2 , U-Mo dan UZr bertambah dengan kenaikan unsur Zr. Besarnya entalpi reaksi dekomposisi sebesar $\Delta H = 3,90$ cal/g untuk paduan U-7Mo-1Zr, $\Delta H = 5,33$ cal/g untuk U-7Mo-2Zr dan $\Delta H = 6,45$ cal/g untuk paduan U-7Mo-3Zr. Reaksi dekomposisi ini sangat dipengaruhi oleh kadar Zr, semakin tinggi kadar Zr maka entalpi yang dibutuhkan pada proses reaksi dekomposisi senyawa $U(Al,Mo)_x$ dan $U(Al,Zr)_x$ semakin besar.

b. Analisis kapasitas panas

Analisis kapasitas panas bahan bakar U-7Mo-xZr/Al telah dilakukan menggunakan DSC. Data pengukuran kapasitas panas bahan bakar U-7Mo-xZr/Al dilakukan pada temperatur 25 °C sampai 450 °C dengan kecepatan pemanasan 5 °C/menit ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 5. Kapasitas panas bahan bakar U-7Mo-xZr/Al dengan variasi kadar Zr 1%, 2% dan 3%.

Gambar 5 menunjukkan bahwa semakin besar kadar Zr dalam bahan bakar U-Mo-Zr/Al, kapasitas panasnya semakin besar. Meningkatnya kapasitas panas bahan bakar U-7Mo-xZr/Al dengan variasi kadar Zr 1%, 2% dan 3% jelas terlihat bila dibandingkan dengan kapasitas panas paduan U-7Mo. Kenaikan kapasitas panas bahan bakar U-7Mo-xZr/Al disebabkan meningkatnya kadar Zr dalam bahan bakar U-MoZr/Al, hal ini menyebabkan interaksi antara atom Zr dengan matriks Al menjadi meningkat, sehingga jumlah panas yang diserap oleh bahan bakar juga semakin meningkat. Meningkatnya besaran kapasitas panas bahan bakar U-MoZr/Al sangat dipengaruhi oleh kadar Zr dan Al. Data analisis kapasitas panas bahan bakar paduan U-MoZr/Al didukung oleh besaran kapasitas panas unsur *molybdenum* sebagai pemadu uranium, dan matriks Al. Dari literatur diketahui persamaan kapasitas panas uranium $Cp.U = 6,64$ cal/°C mol atau $0,1172$ J/g °C, $Cp.Mo = 5,69 + 0,001887T - 5,0300/T^2$ cal/°Cmol atau $0,273$ J/g °C, $Cp.Al = 4,8 + 0,00322T$ cal/°Cmol atau

0,896 J/g °C dan $C_p \text{ ZrO}_2 = 11,62 + 0,01046T - 177700/T^2 \text{ cal/ } ^\circ\text{Cmol}$ atau 0,298 J/g °C^[17,18]. Dari persamaan tersebut diketahui bahwa kapasitas panas uranium dan *molybdenum* lebih kecil dari kapasitas panas Zr dan matriks Al, sehingga besaran kapasitas panas hasil pengukuran dari bahan bakar paduan U-Mo-xZr/Al lebih dominan dipe-ngaruhi oleh kadar Zr dan Al. Penambahan unsur Zr ke dalam paduan U-7Mo sehingga membentuk paduan terner U-7Mo-xZr menyebabkan terjadinya perubahan sifat termal dan mekaniknya. Makin tinggi kadar Zr, butiran semakin halus, kekerasannya meningkat dan kapasitas panasnya meningkat pula. Dengan peningkatan kapasitas panas, maka konduktivitas panasnya juga akan meningkat sehingga transfer panas akan lebih baik dan sesuai yang diperlukan dalam bahan bakar nuklir.

SIMPULAN

Penambahan unsur Zr dengan variasi kadar Zr 1%, 2% dan 3% tidak memberikan perbedaan yang signifikan kepada besarnya temperatur lebur, temperatur perubahan fasa dan kapasitas panas bahan bakar U-7Mo-xZr/Al. Namun kenaikan unsur Zr di dalam bahan bakar paduan U-7Mo-XZr/Al memberikan perubahan terhadap entalpi perubahan fasa, entalpi peleburan matriks Al dan entalpi proses reaksi dekomposisi senyawa U(Al,Mo)_x dan U(Al,Zr)_x menjadi UAl_x (UAl_4 , UAl_3 , UAl_2), U-Mo dan UZr.

UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih disampaikan kepada Ibu Sutri Indaryati dan Yanlinastuti serta rekan-rekan Tim pengembangan bahan bakar reaktor riset PTBBN - BATAN yang telah membantu pelaksanaan penelitian sehingga dapat dituangkan ke dalam makalah ini.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] K. Araldi Cordoso, E.F Urano de Carvalho, M. Durazzo, H.G Riella, (2014), Interdiffusion study between A U7wt% Mo Alloy and Zircaloy-4, RRFM European Research Reactors Conference, Ljubljana, Slovenia.
- [2] S. Van den Berghe, W. Van Renterghem, A. Leenaers, (2008), *Transmission Electron Microscopy Investigation of Irradiated U-7 wt%Mo Dispersion Fuel*, Science Direct, Journal of Nuclear Materials 375, page 340-346.
- [3] John Thomas Creasy, (2011), *Thermal Properties of Uranium-Molybdenum Alloys: Phase Decomposition Effects of Heat Treatment*, A Thesis, Graduate Studies of Texas A & M University.
- [4] L. Olivares, J. Marin, J. Lisboa and H. Pesenti, (2008), *Powder Production of Uranium-Molybdenum-Metal Alloys Applying Hydride-Dehydride Methodology*, RERTR, Washington , D.C. USA.
- [5] J. Allenou, O. Tougait, M. Pasturel, X. Iltis, F. Charollais, M.C. Anselmet, P. Lemoine (2011), *Interdiffusion Behaviors in Doped Molybdenum Uranium and Aluminum or Aluminum Silicon Dispersion Fuels: Effects of the Microstructure*, Journal Nuclear Materials 416 (2011).
- [6] Supardjo, Agoeng K, Boybul, (2011), Pembuatan Ingot Paduan U-7Mo-xZr Dengan Menggunakan Teknik Peleburan Dan Karakterisasinya,” Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir, URANIA Vol. 17 No 3, ISSN 0852-4777, Akreditasi No.265/AU1/P2MBI/05/2010.
- [7] Leenaers, A. (2004), Progress of The RERTR Program in 2001, 6th *International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management*, Germany.
- [8] Kim, C.K, et.al, (2002), *Status Of The Qualification Program for Atomized*

- UMo Dispersion Rod Type Fuel in Korea*, 6th International Tecical Meeting on RRFM, Belgium.
- [9] C. Reiter, H. Breitzkreutz, T.K. Huber, T. Zweifel, W. Petry, (2014), *Influence of Thermal Annealing On The Specific Heat Capacity of Different Dispersion U-(7-8)wt% Mo fuels*, RRFM European Research Reactors Conference, Ljubljana, Slovenia.
- [10] M. Mirandou, M. Granovsky, M. Ortiz, S. Balart, S. Aricó and L. Gribaudo, (2004), *Reaction Layer Between U-7wt%Mo and Al alloys in Chemical Diffusion Couples*, RERTR, Vienna, Austria.
- [11] DF. Sears, (2004), *Development, Irradiation Testing and PIE of UMo Fuel at AECL*, RERTR, Vienna, Austria.
- [12] Jong Man Park, Ho jin Ryu, Jae Soon Park, Seok Jin Oh, Chang Kyu Kim, Yeon Soo Kim, G.L. Hofman (2007), *Phase Stability of UMoTi alloys and Interdiffusion Behaviors of UMoTi/Al-Si*, RERTR, Prague, Czech Republic
- [13] S.H. Lee, J.M. Park and C.K. Kim, (2007), *Thermophysical Properties of U-Mo/Al Alloy Dispersion Fuel Meats*, *International Journal of Thermophysics*, vol 28, No. 5.
- [14] D.E. Burkes, G.S. Mickum, D.M. Wachs, (2010), *Thermophysical Properties of U-10Mo Alloy*, INL/EXT-10-19373, Idaho, National Laboratory Idaho Falls, Idaho 83415.
- [15] Aslina Br. Ginting, Supardjo, Agoeng Kadarjono, Dian Anggraini, (2011), *Pengaruh Kandungan Molibdenum Terhadap Perubahan Fasa dan Kapasitas Panas Ingot Paduan UMo*, *Jurnal ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir "URANIA"*, Juni, Vol. 17 No.2, hal 76-86. ISSN No. 0852-4777. Akreditasi No. 395/AU2/P2MI-LIPI/04/2012
- [16] Aslina Br. Ginting, Supardjo, (2012), *Komparasi Analisis Reaksi Termokimia Matrik Al Dengan Bahan Bakar U-Mo/Al Dan U₃Si₂/Al Menggunakan Differential Thermal Analysis*, *Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir "URANIA"*, Juni, Vol. 18 No.1, hal 12-20. ISSN No. 0852-4777. Akreditasi No. 395/AU2/P2MI-LIPI/04/2012
- [17] Robert H. Perry, (1984), *Perry's Chemical Engineers Hand Book*, Sixth Edition, Mc Graw Hill.
- [18] Khrilov P.L, Bogoslovskaya G.P, (2000), *Reference Heat and Mass Transfer in Nuclear Power Installations Book*, M, Energratomi2dat, Rusia.

